

Docket No.: 43888-280

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of : Customer Number: 20277  
Hideo OHARA, et al. : Confirmation Number: 6765  
Serial No.: 10/685,698 : Group Art Unit: 1746  
Filed: October 16, 2003 : Examiner: Unknown

For: SEPARATOR PLATE FOR POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL AND  
POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL USING THE SAME

TRANSMITTAL OF CERTIFIED PRIORITY DOCUMENT

Mail Stop CPD  
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

At the time the above application was filed, priority was claimed based on the following application:

**Japanese Patent Application No. 2002-301811, filed October 16, 2002**

A copy of the priority application listed above is enclosed.

Respectfully submitted,

MCDERMOTT, WILL & EMERY

Michael E. Fogarty  
Registration No. 36,139

600 13<sup>th</sup> Street, N.W.  
Washington, DC 20005-3096  
(202) 756-8000 MEF:tlb  
Facsimile: (202) 756-8087  
Date: February 10, 2004

43888-280  
OHARA, et al.  
October 16, 2003

日本国特許庁

JAPAN PATENT OFFICE

McDermott, Will & Emery

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年10月16日  
Date of Application:

出願番号 特願2002-301811  
Application Number:

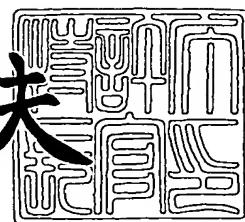
[ST. 10/C] : [JP2002-301811]

出願人 松下電器産業株式会社  
Applicant(s):

2003年10月7日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 2033740210

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 08/00

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 小原 英夫

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 羽藤 一仁

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 長谷 伸啓

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 日下部 弘樹

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 粉川 勝蔵

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 浦田 ▲隆▼行

## 【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1006 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 松本 敏宏

## 【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1006 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 竹口 伸介

## 【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1006 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 柴田 礎一

## 【特許出願人】

【識別番号】 000005821

【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100072431

【弁理士】

【氏名又は名称】 石井 和郎

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100117972

【弁理士】

【氏名又は名称】 河崎 真一

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 066936

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0114078

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板およびそれを用いた高分子電解質型燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 導電性カーボンを含む電子良導体部位と、前記電子良導体部位の周りを囲む樹脂部位とにより構成され、前記電子良導体部位の両面にそれぞれガスまたは冷却水を流通させる第一の溝ならびに第二の溝を有する高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板。

【請求項 2】 前記電子良導体部位と前記樹脂部位とが一体に成形され、前記樹脂部位が、前記第一の溝に連通する第一のマニホールド孔および前記第二の溝に連通する第二のマニホールド孔を有する請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板。

【請求項 3】 前記電子良導体部位と前記樹脂部位との間に第三の部位を有する請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板。

【請求項 4】 前記電子良導体部位および前記樹脂部位がそれぞれ射出成形により成形されている請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板。

【請求項 5】 前記電子良導体部位が、無機導電性フィラーと樹脂との混合物により構成されている請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板。

【請求項 6】 前記樹脂部位が気密弾性体により構成されている請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板。

【請求項 7】 前記樹脂部位が熱可塑性樹脂を含む請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板。

【請求項 8】 前記電子良導体部位および前記樹脂部位が、同じ主要分子構造を有する樹脂を含む請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板。

【請求項 9】 水素イオン伝導性高分子電解質膜と前記電解質膜を挟むアノードおよびカソードとを包含する複数の電解質膜・電極接合体、ならびに前記電

解質膜・電極接合体と交互に積層された複数のセパレータ板を含む電池スタックを具備する高分子電解質型燃料電池であって、

前記セパレータ板が、請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板である高分子電解質型燃料電池。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

###### 【発明の属する技術分野】

本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、家庭内コーデネーションシステム等に使用する高分子電解質型燃料電池に関する。さらに詳しくは、その電池を構成する導電性セパレータ板に関する。

##### 【0002】

###### 【従来の技術】

高分子電解質膜を用いた燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気などの酸素を含有する酸化剤ガスとを、電気化学的に反応させることにより、電力と熱とを同時に発生させる。この燃料電池は、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜、および高分子電解質膜の両面に形成された一対の電極、すなわちアノードとカソードから構成される。前記電極は、白金系の金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とし、高分子電解質膜の両面に形成される触媒層、および前記触媒層の外面に形成される、優れた通気性と電子導電性とを併せ持つガス拡散層からなる。

##### 【0003】

次に、供給する燃料ガスおよび酸化剤ガスが外にリークしたり、二種類のガスが互いに混合したりしないように、電極の周囲には、高分子電解質膜を挟んでガスシール材やガスケットが配置される。このガスシール材やガスケットは、電極および高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立てられ、これを、MEA（電解質膜・電極接合体）と呼ぶ。

##### 【0004】

MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電気的に直列に接続し、電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運

び去るためのガス流路を有する導電性のセパレータ板が配置される。ガス流路は、セパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータ板の表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。

#### 【0005】

この溝に反応ガスを供給するためは、反応ガスを供給する配管を、使用するセパレータ板の枚数に分岐し、その分岐先を直接セパレータ板上の溝につなぎ込む配管治具が必要となる。この治具をマニホールドと呼び、上記のような燃料ガスの供給配管から直接つなぎ込むタイプを外部マニホールドと呼ぶ。また、このマニホールドには、構造をより簡単にした内部マニホールドと呼ぶ形式のものがある。内部マニホールドとは、ガス流路を形成したセパレータ板に、貫通した孔を設け、ガス流路の出入り口をこの孔まで通し、この孔から直接反応ガスを供給するものである。

#### 【0006】

燃料電池は運転中に発熱するので、電池を良好な温度状態に維持するためには、冷却水等で冷却する必要がある。そこで通常、1～3セル毎に冷却水用の流路を設ける。通常は、セパレータ板の背面に冷却水用の流路を設けて冷却部とする場合が多い。これらのMEAとセパレータ板とを交互に重ねていき、10～200セル積層した後、その積層体を集電板および絶縁板を介して端板で挟み、締結ボルトで両端から固定するのが一般的な積層電池の構造である。

#### 【0007】

このような高分子電解質型燃料電池のセパレータ板は、高い導電性および高い気密性、かつ電池反応に対して高い耐食性を有する必要がある。このため、従来のセパレータ板は、通常グラッシーカーボンや膨張黒鉛などの導電性を有するカーボン材料により構成され、ガス流路もその表面での切削や、膨張黒鉛の場合は、型による成形により作製していた。

また、最近では、低コスト化のため黒鉛と樹脂とを混合したものを型に入れ、圧縮成形により作製するものも使用されている。さらに、黒鉛および樹脂を混合したものを射出成形により作製する試みも行われている。

#### 【0008】

### 【発明が解決しようとする課題】

セパレータ板の作製方法としては、黒鉛および熱可塑性樹脂を混合して得られたコンパウンドを、射出成形機において溶融混練し、それを金型内に射出する射出成形による方法が提案されている。しかし、セパレータ板には高い電子導電性が必要とされるため、コンパウンド中に含まれる導電性フィラーの割合が高くなる。この場合、コンパウンドの熱伝導率が高くなり、且つ溶融時の流動性も低くなるため、成形性が極端に悪化し、充填不良やウエルド部の強度不足等の問題があった。また、セパレータ板の流路形状に対する制約や流路周辺部に配置されるマニホールド孔の強度低下や気密性の低下等により燃料電池の性能が低下してしまうという問題もあった。

### 【0009】

本発明では、上記の従来の課題を解決するため、優れた導電性かつ成形性を有する高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板を提供することを目的とする。また、優れた導電性かつ成形性を有する高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板を用いることにより、電池特性に優れた高分子電解質型燃料電池を提供することを目的とする。

### 【0010】

#### 【課題を解決するための手段】

本発明のポイントは、セパレータ板における電子導電性が必要な部位と不需要な部位にそれぞれ異なるコンパウンドを用いることにより、優れた成形性と電子導電性を同時に得ることができることを見出したことにある。

すなわち、本発明の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板は、導電性カーボンを含む電子良導体部位と、前記電子良導体部位の周りを囲む樹脂部位により構成され、前記電子良導体部位の両面にそれぞれガスまたは冷却水を流通させる第一の溝ならびに第二の溝を有する。

### 【0011】

前記電子良導体部位と前記樹脂部位とが一体に成形され、前記樹脂部位が、前記第一の溝に連通する第一のマニホールド孔および前記第二の溝に連通する第二のマニホールド孔を有することが好ましい。

前記電子良導体部位と前記樹脂部位との間に第三の部位を有することが好ましい。

前記電子良導体部位および前記樹脂部位がそれぞれ射出成形により成形されていることが好ましい。

### 【0012】

前記電子良導体部位が、無機導電性フィラーと樹脂との混合物により構成されていることが好ましい。

前記樹脂部位が気密弹性体により構成されていることが好ましい。

前記樹脂部位が熱可塑性樹脂を含むことが好ましい。

前記電子良導体部位および前記樹脂部位が、同じ主要分子構造を有する樹脂を含むことが好ましい。

### 【0013】

本発明の高分子電解質型燃料電池は、水素イオン伝導性高分子電解質膜と前記電解質膜を挟むアノードおよびカソードとを包含する複数の電解質膜・電極接合体、ならびに前記電解質膜・電極接合体と交互に積層された複数のセパレータ板を含む電池スタックを具備しており、前記セパレータ板が、本発明の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板である。

### 【0014】

#### 【発明の実施の形態】

本発明の高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板は、導電性カーボンを含む電子良導体部位と樹脂部位とにより構成される。

前記電子良導体部位に用いられる樹脂としては、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリプロピレン、メタクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリビニルアルコール、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテルケトン、ポリエーテルイミド、フッ素樹脂、エステル樹脂、液晶ポリマー、芳香族ポリエステル、ポリアセタール、ポリフェニレンエーテル等が挙げられる。

### 【0015】

前記樹脂部位に用いられる樹脂としては、PPS樹脂、ポリエチレン、塩化ビ

ニル樹脂、ポリスチレン、A S樹脂、A B S樹脂、メタクリル酸メチル樹脂、ポリアミド樹脂、変性ポリフェニレンエーテル、超高分子量ポリエチレン、ポリメチルペンテン、シンジオタクチックポリスチレン、ポリサルフォン、ポリエーテルサルフォン、ポリタルアミド、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレート、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリイミド、液晶ポリマー、フッ素樹脂、スチレン系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマー、塩化ビニル系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー、スチレン-ブタジエン系熱可塑性エラストマー、ニトリル系エラストマー、ガラス強化したポリエステル系エラストマー等が挙げられる。

### 【0016】

前記電子良導体部位と樹脂部位との間に第三の部位を有することが好ましい。第三の部位に用いられる材料としては、少なくとも電子良導体部位に用いられた樹脂と樹脂部位に用いられた樹脂とを混合したものを用いることが好ましい。特に、電子良導体部位および樹脂部位にそれぞれ上記で挙げられた樹脂を用い、第三の部位にそれらの樹脂を混合したものを用いることが好ましい。

以下に、本発明の実施の形態を図面を参照しながら説明する。

### 【0017】

#### 《実施の形態1》

図3～4にアノード側セパレータ板およびカソード側セパレータ板を兼ねたセパレータ板10を示す。

セパレータ板10は、アノードまたはカソードと対向する電子良導体部位10aおよびその周りを囲む樹脂部位10bからなる。樹脂部位10bには、それぞれ一対の酸化剤ガス用マニホールド孔5、燃料ガス用マニホールド孔6、および冷却水用マニホールド孔7を有する。電子良導体部位10aのカソードと対向する面には、図3のように一対の酸化剤ガス用マニホールド孔5を連絡する酸化剤ガスの流路5aを有し、その背面のアノードと対向する面には、図4のように一対の燃料ガス用マニホールド孔6を連絡する燃料ガスの流路6aを有する。

### 【0018】

なお、電子良導体部位20aおよび樹脂部位20bの接合形状は、図5に示すような板厚方向に垂直な面とおしの突き当り形状による接合以外に、図6～8に示すように、電子良導体部位の凸形状と、樹脂部位の凹形状との噛み合わせによる接合、樹脂部位周辺に部分的に穴が開いた形状による接合、または樹脂部位からみてアンダーカット状態による接合としても構わない。

### 【0019】

#### 《実施の形態2》

図9～12に冷却部を有する複合セパレータ板を構成するカソード側セパレータ板20およびアノード側セパレータ板30をそれぞれ示す。

### 【0020】

カソード側セパレータ板20は、カソードと対向する部分が電子良導体部位20aで構成され、その周りが樹脂部位20bで構成されている。

電子良導体部位20aのカソードと対向する面には、図9のように一対の酸化剤ガス用マニホールド孔5を連絡する酸化剤ガスの流路5aを有し、その背面の電子良導体部位20aには、図10のように一対の冷却水用マニホールド孔7を連絡する冷却水の流路7aを有する。

### 【0021】

一方、アノード側セパレータ板30は、アノードと対向する部分が電子良導体部位30aで構成され、その周りが樹脂部位30bで構成されている。

電子良導体部位30aのアノードと対向する面には、図11のように一対の燃料ガス用マニホールド孔6を連絡する燃料ガスの流路6aを有し、その背面の電子良導体部位30aには、図12のように一対の冷却水用マニホールド孔7を連絡する冷却水の流路7aを有する。

### 【0022】

上記カソード側セパレータ板20およびアノード側セパレータ板30の冷却水の流路を有する面を向き合わせて接合することにより、冷却水の流路7aが重なり、一つの冷却水の流路を形成し、セパレータ板内部に冷却部を設けた構成となる。

### 【0023】

実施の形態1および2のように導電性を必要とするアノードまたはカソードと対向する部分に電子良導体部位を設け、導電性を必要としない部位に樹脂部位を設けることにより、優れた成形性かつ導電性が得られる。

#### 【0024】

##### 《実施の形態3》

図16および17に酸化剤ガス用マニホールド孔、燃料ガス用マニホールド孔、および冷却水用マニホールド孔を囲むリブと、その背面にリブに対応する凹部とを設けた、アノード側セパレータ板およびカソード側セパレータ板を兼ねたセパレータ板を示す。また、図18に図16のA-A'断面図を示す。

#### 【0025】

セパレータ板40は、アノードまたはカソードと対向する電子良導体部位40aおよびその周りを囲む樹脂部位40bからなる。樹脂部位40bのカソード側における酸化剤ガス用マニホールド孔5、燃料ガス用マニホールド孔6、および冷却水用マニホールド孔7の周囲には、それぞれリブ5b、6bおよび7bが設けられている。また、その背面の樹脂部位の40bのアノード側における酸化剤ガス用マニホールド孔5、燃料ガス用マニホールド孔6、および冷却水用マニホールド孔7の周囲には、それぞれリブに対応する凹部5c、6cおよび7cが設けられている。

#### 【0026】

樹脂部位は、気密弹性体であり、ガスケットの役割も兼ねることができるため、電子良導体部位40aが、樹脂部位40bよりも一段低い構成となっている。

上記構成のセパレータ板を用いることにより、ガスケットが不要になる。また、樹脂部位でシール性が必要な箇所にリブまたは凹部を設け、隣接するセパレータ板における樹脂部位のリブまたは凹部と係合させることにより、セパレータ板のシール性を確保することができる。

#### 【0027】

##### 《実施の形態4》

図20に、樹脂部位における酸化剤ガスまたは燃料ガス用マニホールド孔へ連絡する酸化剤ガスまたは燃料ガスの流路の上方を板状部材で覆ったアノード側セ

パレータ板およびカソード側セパレータ板を兼ねたセパレータ板50を示す。また、図21にその板状部材を設けた付近の断面の一部を示す。

### 【0028】

セパレータ板50は、アノードまたはカソードと対向する電子良導体部位50aおよびその周りを囲む樹脂部位50bからなる。樹脂部位50bにおける酸化剤ガスの流路50aの上方が板状部材50cで覆われている。また、その背面では、アノード側の樹脂部位における燃料ガスの流路の上方が板状部材で覆われている（図示しない）。

このような構成とすることにより、セパレータ板と隣接するガスケットが、セパレータ板の樹脂部位における酸化剤ガスおよび燃料ガスの流路付近においても十分圧接されるため、シール性が向上する。

### 【0029】

#### 《実施の形態5》

図24に、電子良導体部位と樹脂部位との間に樹脂からなる第三の部位を設けたアノード側セパレータ板およびカソード側セパレータ板を兼ねたセパレータ板60を示す。

### 【0030】

セパレータ板60は、アノードまたはカソードと対向する電子良導体部位60a、その周りを囲む樹脂部位60b、および電子良導体部位60aと樹脂部位60bとの間に設けられた第三の部位60cからなる。

### 【0031】

電子良導体部位と樹脂部位との間に第三の部位を設けることにより、電子良導体部位と第三の部位、第三の部位と樹脂部位とのそれぞれの界面において樹脂が融着しあい、電子良導体部位と樹脂部位との接合性が良くなる。

### 【0032】

なお、第三の部位60cを介した電子良導体部位60aと樹脂部位60bの接合形状は、図25に示すような板厚方向に垂直な面どおしの突き当て形状による接合以外に、図26～28に示すように、電子良導体部位の凸形状と、樹脂部位の凹形状との噛み合わせによる接合、樹脂部位周辺に部分的に穴が開いた形状に

よる接合、または樹脂部位からみてアンダーカット状態による接合としても構わない。

### 【0033】

#### 【実施例】

以下、本発明の実施例を説明する。

#### 《実施例1》

##### (i) セパレータ板の作製

電子良導体部位用のコンパウンドおよび樹脂部位用のコンパウンドを、溶融混練可能な2本の射出ノズル1aおよび1bを備えた図1および2に示す射出成形機2にそれぞれ投入し、電子良導体部位を成形後、樹脂部位を成形することにより電子良導体部位および樹脂部位からなる所定の形状のセパレータ板を作製した。電子良導体部位用コンパウンドには、黒鉛とPP(ポリプロピレン)樹脂とを重量比7:3の割合で混合したものを用いた。樹脂部位用コンパウンドには、PPS(ポリフェニレンサルファイド)樹脂とガラスフィラーレとを重量比10:3の割合で混合したものを用いた。

### 【0034】

このとき、金型ユニット4には、所定の位置に燃料ガス、酸化剤ガスおよび冷却水の流路を形成する金型とマニホールドを含むその他の部位を形成する金型を設置した。金型の材料としては、成形タクトおよび強度の面から炭素工具鋼(SK材)等を用いることが一般的である。しかし、本実施例で用いたセパレータ板は、熱伝導率が高いため、硬化速度が速く成形不良が発生する。そのため、金型には、熱伝導率の低い材料としてSUS630を用い、セパレータ板の成形性を確保した。

### 【0035】

金型温度は150℃、射出ノズル温度は電子良導体部位用コンパウンドに関しては260℃、樹脂部位用コンパウンドに関しては350℃とした。また、射出圧力は1600kgf/cm<sup>2</sup>、射出速度は、電子良導体部位用コンパウンドでは100mm/sec、樹脂部位用コンパウンドでは50mm/sec、成形時間は20秒とした。

上記の条件で実施の形態1のセパレータ板10、実施の形態2のセパレータ板20および30と同様の3種類のセパレータ板を作製した。

上記セパレータ板の電子良導体部位における酸化剤ガス、燃料ガスおよび冷却水の流路は、幅1.5mm、深さ1.0mmの溝をピッチ3mmで設けた。電子良導体部位および樹脂部位の厚さは3mmとした。また、電子良導体部位と樹脂部位の境界形状は、図5に示すように板厚方向に垂直な面どおしの突き当て形状とした。

### 【0036】

#### (ii) MEAの作製

アセチレンブラック系のカーボン粉末に、平均粒径約30Åの白金粒子を重量比4:1の割合で担持させ、電極用の触媒粉末を得た。この触媒粉末をイソプロパノール中に分散させたものと、パーフルオロカーボンスルホン酸の粉末をエチルアルコール中に分散させたものを混合し、電極用ペーストを得た。スクリーン印刷法により、この電極用ペーストを原料として、厚さ $250\mu\text{m}$ のカーボン不織布の一方の面に電極触媒層を形成し、電極を得た。このとき、触媒層形成後の電極触媒層中に含まれる白金量は $0.5\text{mg/cm}^2$ 、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は $1.2\text{mg/cm}^2$ となるように調整した。

### 【0037】

これらの電極は、正極および負極共に同一構成とした。印刷した電極触媒層を内側にして、上記で得られた一対の電極および電極を囲むガスケットで水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟み、ホットプレスすることにより、電解質膜・電極接合体(MEA)を作製した。水素イオン伝導性高分子電解質膜には、パーフルオロカーボンスルホン酸を $25\mu\text{m}$ の厚さに薄膜化したものを用いた。

### 【0038】

#### (iii) 積層電池の作製

次に、図13に示すように、これら3種類のセパレータ板10、20および30で、水素イオン伝導性高分子電解質膜11、ならびに前記電解質膜11を挟むカソード12、アノード13およびガスケット14からなるMEAを挟むことにより、複数個の単電池を直列に接続した。このとき、セパレータ板20および3

0の冷却水の流路7aを有する面を向き合わせて接合することにより、冷却水の流路7aが重なり、一つの冷却水の流路を形成し、セパレータ板内部に冷却部を設けた。すなわち、MEA間にセパレータ板10と、冷却部を構成するセパレータ板20および30とを交互に配することにより、単電池を2セル積層する毎に冷却部を設ける構成とした。

#### 【0039】

以上示した単電池を50セル積層した後、この積層体の両端に集電板と絶縁板とを介してステンレス鋼製の端板を配し、締結ロッドにより10kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で積層体を締結することにより積層電池を作製した。この積層電池を電池Aとした。

なお、締結圧力は小さすぎると燃料ガスや酸化剤ガスが外部へリークし、接触抵抗も大きいので電池性能が低くなり、逆に締結圧力が大きすぎると電極が破損したり、セパレータ板が変形したりするため、ガス流通溝の設計に応じて締結圧力を変えることが重要である。

#### 【0040】

このように作製した電池Aについてリークチェックを行った。リークチェックは、一対のマニホールド孔のうち出口側のマニホールド孔を締め切り、入口側のマニホールド孔からHeガスを0.5kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で流入させ、その時の流入ガス流量で評価した。空気側、燃料ガス側、冷却水側共にガスリークはなく、積層電池としての流体シール性に問題のないことを確認した。また、組立時にマニホールド孔に生じる樹脂のウエルド部にも問題の発生はなかった。

#### 【0041】

##### 《比較例》

気密等方性黒鉛板を切削加工することにより、実施例1と同形状の3種類のセパレータ板をそれぞれ作製した。これらのセパレータ板を用いた以外は、実施例1と同様の方法により従来の積層電池を作製した。この電池を電池Bとした。

#### 【0042】

上記で作製した実施例1の電池Aおよび比較例の電池Bを、それぞれ85℃に保持し、一方の電極側に83℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、も

う一方の電極側に78°Cの露点となるように加湿・加温した空気を供給した。その結果、どちらの電池も電流を外部に出力しない無負荷時には、50Vの電池開放電圧を得た。

また、燃料利用率80%、酸素利用率40%、電流密度0.5A/cm<sup>2</sup>の条件で、これらの電池の出力特性を評価した。その結果、図14に示すように、実施例1の電池Aは、比較例の電池Bと同等の性能を有することが確認された。

#### 【0043】

樹脂部位に電子良導体部位と同じコンパウンドを使用してセパレータ板を作製した場合、金型内への材料充填が不完全となり、所定の形状のセパレータ板を作製することが出来なかった。また、材料充填が可能なレベルまで電子良導体部位用コンパウンドのPPS比率を上げた材料を使用してセパレータ板を作製した場合、セパレータ板の電気抵抗が300～500mΩ・cmと高く、電池性能は低下した。

#### 【0044】

##### 《実施例2》

電子良導体部位用のコンパウンドとして、黒鉛とPPSとを重量比7:3の割合で混合したものを用い、射出成形時の電子良導体部位用のコンパウンドの射出ノズル温度を350°Cとした以外は、実施例1と同様の方法により3種類のセパレータ板10、20および30を作製した。そして、上記で得られた3種類のセパレータ板を用いた以外は、実施例1と同様の方法により積層電池を作製した。この電池を電池Cとした。

#### 【0045】

このようにして作製した実施例2の電池Cについて実施例1と同様の方法によりリークチェックを行った。空気側、燃料ガス側、冷却水側共にガスリークはなく、積層電池としての流体シール性に問題のないことを確認した。流入したHeガスの圧力が、実施例1の電池Aでは、3kgf/cm<sup>2</sup>であったのに対し、実施例2の電池Cでは、5kgf/cm<sup>2</sup>でありセパレータ板のシール性が向上していることが確認された。

リークチェックを行ったサンプルを観察した結果、電子良導体部位と樹脂部位

との界面における接合性が実施例 1 に比べて実施例 2 のセパレータ板の方が優れていることが確認された。また、組立時にマニホールド孔に生じる樹脂のウエルド部にも問題の発生はなかった。

#### 【0046】

このように作製した実施例 2 の電池 C に実施例 1 と同様の条件で反応ガスを供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、50V の電池開放電圧を得た。

また、実施例 1 と同様の条件で電池 C の出力特性を評価した。この評価結果を比較例の電池 B とともに図 15 に示す。実施例 2 の電池 C は、比較例の電池 B と同等の性能を有することが確認された。

#### 【0047】

##### 《実施例 3》

###### (i) セパレータ板の作製

電子良導体部位用のコンパウンドおよび樹脂部位用のコンパウンドを、実施例 1 と同様の方法により図 1 および 2 の射出成形機 2 にそれぞれ投入し、電子良導体部位および樹脂部位からなる所定の形状のセパレータ板を作製した。電子良導体部位用コンパウンドには、黒鉛と PPS 樹脂とを重量比 7:3 の割合で混合したもの用いた。樹脂部位用コンパウンドには、ポリスチレン樹脂とガラスファイバーとを重量比 10:3 の割合で混合したもの用いた。

#### 【0048】

このとき、金型ユニット 4 には、所定の位置に燃料ガス、酸化剤ガスおよび冷却水の流路を形成する金型とマニホールド孔を含むその他の部位を形成する金型とを設置した。

金型温度は 150°C、射出ノズル温度は電子良導体部位用コンパウンドに関しては 350°C、樹脂部位用コンパウンドに関しては 250°C とした。また、射出圧力は 1600 kgf/cm<sup>2</sup>、射出速度は、電子良導体部位用コンパウンドでは 100 mm/sec、樹脂部位用コンパウンドでは 30 mm/sec、成形時間は 20 秒とした。

#### 【0049】

上記の条件で射出成形し、図16および17に示す実施の形態3と同様の構造を有する樹脂部位のマニホールド孔を囲むリブと、その背面にリブに対応する凹部とを設けたセパレータ板40を作製した。

また、セパレータ板40と組み合わせて用いる冷却部を有する複合セパレータ板を構成するカソード側セパレータ板およびアノード側セパレータ板も作製した。

#### 【0050】

カソード側セパレータ板のカソード側は、実施の形態3のセパレータ板40のカソード側と同様の構成とした。また、カソード側セパレータ板の冷却部側は、実施の形態2のカソード側セパレータ板20の冷却部側の酸化剤ガス用マニホールド孔5、燃料ガス用マニホールド孔6および冷却水用マニホールド孔7の周囲に凹部を設けた構成とした。

#### 【0051】

アノード側セパレータ板のアノード側は、実施の形態3のセパレータ板40のアノード側と同様の構成とした。また、アノード側セパレータ板の冷却部側は、実施の形態2のアノード側セパレータ板30の冷却部側の酸化剤ガス用マニホールド孔5、燃料ガス用マニホールド孔6および冷却水用マニホールド孔7の周囲にリブを設けた構成とした。

#### 【0052】

##### (ii) 積層電池の作製

ガスケットを用いずに実施例1と同様のカソード、アノードおよび水素イオン伝導性高分子電解質膜で構成されたMEAと、上記で得られた3種類のセパレータ板とを用いて実施例1と同様の方法で複数個の単電池を直列に接続した。このとき、カソード側セパレータ板およびアノード側セパレータ板の冷却水の流路を有する面を向き合わせて接合することにより、冷却水の流路が重なり、一つの冷却水の流路を形成し、セパレータ板内部に冷却部を設けた。すなわち、MEA間にセパレータ板40と、冷却部を構成するカソード側セパレータ板およびアノード側セパレータ板とを交互に配することにより、単電池を2セル積層する毎に冷却部を設ける構成とした。

### 【0053】

各セパレータ板の樹脂部位が、ポリスチレンからなるゴム状の気密弹性体であり、樹脂部位がガスケットの役割を兼ねることができるために、ガスケットを使用する必要がなかった。

上記のような単電池を50セル積層した後、実施例1と同様の方法により積層電池を作製した。この電池を電池Dとした。

### 【0054】

このようにして作製した電池Dについて実施例1と同様の方法によりリークチェックを行った。空気側、燃料ガス側、冷却水側共にガスリークはなく、積層電池としての流体シール性に問題のないことを確認した。また、樹脂部位に用いた気密弹性体の樹脂が、従来用いられていたガスケットと同様の効果を有することを確認した。また、組立時にマニホールド孔に生じる樹脂のウェルド部にも問題の発生はなかった。

### 【0055】

このように作製した実施例3の電池Dに、実施例1と同様の条件で反応ガスを供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、50Vの電池開放電圧を得た。

また、実施例1と同様の条件で、電池Dの出力特性を評価した。この評価結果を比較例の電池Bとともに図19に示す。実施例3の電池Dは、比較例の電池Bと同等の性能を有することが確認された。

### 【0056】

#### 《実施例4》

電子良導体部位用のコンパウンドおよび樹脂部位用のコンパウンドを、実施例1と同様の方法により、図1および2の射出成形機2にそれぞれ投入し、所定の形状のセパレータ板を作製した。電子良導体部位用コンパウンドには、黒鉛とPPS樹脂とを重量比7:3の割合で混合したものを用いた。樹脂部位用コンパウンドには、PPS樹脂とガラスフィラーとを重量比10:3の割合で混合したものを用いた。

### 【0057】

このとき、金型には燃料ガス、酸化剤ガスおよび冷却水の流路を形成する金型とマニホールド孔を含むその他の部位を形成する金型を用いた。金型の材料としては、成形タクトおよび強度の面から炭素工具鋼（SK材）等を用いることが一般的である。しかし、本実施例で用いたセパレータ板は、熱伝導率が高いため、硬化速度が速く成形不良が発生する。そのため、金型には、熱伝導率の低い材料としてSUS630を用い、セパレータ板の成形性を確保した。

#### 【0058】

金型温度は150℃、射出ノズル温度は電子良導部位用コンパウンドおよび樹脂部位用コンパウンドとともに350℃とした。また、射出圧力は1600kgf/cm<sup>2</sup>、射出速度は、電子良導体部位用コンパウンドでは100mm/sec、樹脂部位用コンパウンドでは50mm/sec、成形時間は20秒とした。

また、射出成形は、樹脂部位に形成される一対のマニホールド孔を連絡する流路の上方に、予めSUS316の板状部材を配してから行った。板状部材の材料としては、SUS316以外に、例えば、SUS304L、SUS316L等の耐食性ステンレス鋼、チタン等の耐食性金属、樹脂を用いてもよい。

#### 【0059】

上記の条件で射出成形し、図20に示す実施の形態4と同様の構造を有するアノード側セパレータ板およびカソード側セパレータ板を兼ねたセパレータ板50を作製した。

また、セパレータ板50と組み合わせて用いる冷却部を有する複合セパレータ板を構成するカソード側セパレータ板およびアノード側セパレータ板も作製した。

#### 【0060】

カソード側セパレータ板は、実施の形態2のカソード側セパレータ板20におけるカソード側の構造を実施の形態5のセパレータ板50のカソード側の構造とした。

アノード側セパレータ板は、実施の形態2のアノード側セパレータ板30におけるアノード側の構造を実施の形態5のセパレータ板50のアノード側の構造とした。

### 【0061】

上記で得られた3種類のセパレータ板を用いた以外は、実施例1と同様の方法により積層電池を作製した。この電池を電池Eとした。

このようにして作製した電池Eについてリークチェックを行った。リークチェックは、流路の出口側マニホールド孔を締め切り、入口側マニホールド孔からHeガスを7kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で流入させ、そのときの流入ガス流量で評価した。空気側、燃料ガス側、冷却水側共にガスリークはなく、積層電池としての流体シール性に問題のないことを確認した。

### 【0062】

比較として実施例2の電池Cについても同様にリークチェックを行ったところ、流入したHeガスの圧力が、実施例2の電池Cでは、5kgf/cm<sup>2</sup>までであったのに対し、実施例4の電池Eでは、7kgf/cm<sup>2</sup>であり、セパレータ板のシール性が向上していることが確認された。これは、セパレータ板に形成された一対のマニホールド孔を連絡する流路のうち、ガスケットに対向する樹脂部位に形成された部分を板状部材で覆うことにより、ガスケットがセパレータ板に十分圧接されるため、シール性が向上したことによる。また、組立時にマニホールド孔に生じる樹脂のウェルド部にも問題の発生はなかった。

### 【0063】

このように作製した実施例4の電池Eに、実施例1と同様の条件で反応ガスを供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、50Vの電池開放電圧を得た。

また、実施例1と同様の条件で、電池Eの出力特性を評価した。この評価結果を比較例の電池Bとともに図22に示す。実施例4の電池Eは、比較例の電池Bと同等の性能を有することが確認された。

### 【0064】

#### 《実施例5》

電子良導体部位用のコンパウンド、樹脂部位用のコンパウンド、および第三の部位用のコンパウンドを、溶融混練可能な3本の射出ノズル1a、1bおよび1cを備えた図23に示す構成の射出成形機3にそれぞれ投入し、多色射出成形に

より所定の形状のセパレータ板を作製した。電子良導体部位用コンパウンドには、黒鉛とPPS樹脂とを重量比7:3の割合で混合したものを用いた。樹脂部位用コンパウンドには、ポリアミド樹脂とガラスフィラーレとを重量比10:3の割合で混合したものを用いた。さらに、第三の部位用のコンパウンドには、PPS樹脂とポリアミド樹脂とを重量比1:1の割合で混合したものを用いた。

#### 【0065】

このとき、金型ユニット4には酸化剤ガス、燃料ガスおよび冷却水用の流路を形成する金型とマニホールドを含むその他の部位を形成する金型を用いた。金型の材料としては、成形タクトおよび強度の面から炭素工具鋼（SK材）等を用いることが一般的である。しかし、本実施例で用いたセパレータ板は、熱伝導率が高いため、硬化速度が速く成形不良が発生する。そのため、金型には、熱伝導率の低い材料としてSUS630を用い、セパレータ板の成形性を確保した。

#### 【0066】

金型温度は150℃、射出ノズル温度は電子良導体部位用コンパウンドおよび第三の部位用コンパウンドに関しては350℃、樹脂部位用コンパウンドに関しては280℃とした。また、射出圧力は1600kgf/cm<sup>2</sup>、射出速度は、電子良導体部位用コンパウンドでは100mm/sec、樹脂部位用コンパウンドおよび第三の部位用コンパウンドでは50mm/sec、成形時間は30秒とした。

#### 【0067】

上記の条件で射出成形することによりセパレータ板10、20および30の電子良導体部位と樹脂部位の間にそれぞれ第三の部位を設けた所定の3種類のセパレータ板を作製した。各セパレータ板における電子良導体部位、樹脂部位、第三の部位の厚さは、それぞれ3mmとした。なお、セパレータ板10に第三の部位を設けた構造は、図24に示す実施の形態5のセパレータ板60と同様の構造である。

なお、本実施例では、第三の部位を介した電子良導体と樹脂部位の境界形状は、図25に示すように板厚方向に垂直な面どおしの突き当て形状とした。

#### 【0068】

つぎに、上記で得られた第三の部位を備えた3種類のセパレータ板を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、積層電池を作製した。この電池を電池Fとした。

実施例5の電池Fについてリークチェックを行った。リークチェックは、流路の出口側マニホールド孔を締め切り、入口側マニホールド孔からHeガスを7kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で流入させ、そのときの流入ガス流量で評価した。空気側、燃料ガス側、冷却水側共にガスリークはなく、積層電池としての流体シール性に問題のないことを確認した。

#### 【0069】

比較として実施例2の電池Cについてもリークチェックを行ったところ、流入したHeガスの圧力は、実施例2の電池Cでは、5kgf/cm<sup>2</sup>までであったのに対し、実施例5の電池Fでは、7kgf/cm<sup>2</sup>であり、セパレータ板のシール性が向上していることが確認された。

#### 【0070】

さらに、入口側マニホールド孔からHeガスを5kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で流入させて、上記と同様にリークチェックを行った。比較として実施例1の電池Aについてもリークチェックを行ったところ、流入したHeガスの圧力は、実施例1の電池Aでは、3kgf/cm<sup>2</sup>までであったのに対し、実施例5の電池Fでは、7kgf/cm<sup>2</sup>でありセパレータ板のシール性が向上していることが確認された。

#### 【0071】

リークチェックを行った実施例5のセパレータ板を観察した結果、電子良導体部位と第三の部位との界面および第三の部位と樹脂部位との界面がそれぞれ融着しており、界面の接合性については実施例5のセパレータ板の方が優れていることが確認された。また、組み立て時にマニホールド孔に生じる樹脂のウエルド部にも問題の発生はなかった。

#### 【0072】

このように作製した実施例5の電池Fに実施例1と同様の条件で反応ガスを供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、50Vの電池開放電

圧を得た。

実施例1と同様の条件で、電池Fの出力特性を評価した。この評価結果を比較例の電池Bとともに図29に示す。実施例5の電池Fは、比較例の電池Bと同等の性能を有することが確認された。

### 【0073】

#### 【発明の効果】

以上のように本発明によれば、セパレータ板の射出成形時に電子良導体部位と樹脂部位で使用するコンパウンドが異なるため、セパレータ板は優れた導電性と成形性を同時に得ることができる。また、このセパレータ板を用いることにより電池特性に優れた高分子電解質型燃料電池を得ることができる。

#### 【図面の簡単な説明】

##### 【図1】

2本の射出ノズルを備えた射出成形機の上面図である。

##### 【図2】

2本の射出ノズルを備えた射出成形機の正面図である。

##### 【図3】

本発明の実施の形態1のセパレータ板の正面図である。

##### 【図4】

本発明の実施の形態1のセパレータ板の背面図である。

##### 【図5】

実施の形態1のセパレータ板の電子良導体部位と樹脂部位との境界付近の断面図である。

##### 【図6】

実施の形態1の第2のセパレータ板の電子良導体部位と樹脂部位との境界付近の断面図である。

##### 【図7】

実施の形態1の第3のセパレータ板の電子良導体部位と樹脂部位との境界付近の断面図である。

##### 【図8】

実施の形態1の第4のセパレータ板の電子良導体部位と樹脂部位との境界付近の断面図である。

【図9】

本発明の実施の形態2のカソード側セパレータ板の正面図である。

【図10】

本発明の実施の形態2のカソード側セパレータ板の背面図である。

【図11】

本発明の実施の形態2のアノード側セパレータ板の正面図である。

【図12】

本発明の実施の形態2のアノード側セパレータ板の背面図である。

【図13】

本発明の実施例1および2の積層電池の構成を示した図である。

【図14】

実施例1の電池Aおよび比較例の電池Bの出力特性を示した図である。

【図15】

実施例2の電池Cおよび比較例の電池Bの出力特性を示した図である。

【図16】

本発明の実施の形態3のセパレータ板の正面図である。

【図17】

本発明の実施の形態3のセパレータ板の背面図である。

【図18】

図16のA-A'断面図である。

【図19】

本発明の実施例3の電池Dおよび比較例の電池Bの出力特性を示した図である

。

【図20】

本発明の実施の形態4のセパレータ板の正面図である。

【図21】

図20の板状部材を設けた付近の断面の一部を示す図である。

**【図22】**

本発明の実施例4の電池Eおよび比較例の電池Bの出力特性を示した図である。

**【図23】**

3本の射出ノズルを備えた射出成形機の上面図である。

**【図24】**

本発明の実施の形態5のセパレータ板の正面図である。

**【図25】**

実施の形態5のセパレータ板の第三の部位付近の断面図である。

**【図26】**

実施の形態5の第2のセパレータ板の第三の部位付近の断面図である。

**【図27】**

実施の形態5の第3のセパレータ板の第三の部位付近の断面図である。

**【図28】**

実施の形態5の第4のセパレータ板の第三の部位付近の断面図である。

**【図29】**

本発明の実施例5の電池Fおよび比較例の電池Bの出力特性を示した図である。

**【符号の説明】**

- 1 a 電子導体部位用の射出ノズル
- 1 b 樹脂部位用の射出ノズル
- 1 c 第三の部位用の射出ノズル
- 2、3 射出成形機
- 4 金型ユニット
- 5 酸化剤ガス用マニホールド孔
- 5 a 酸化剤ガスの流路
- 6 燃料ガス用マニホールド孔
- 6 a 燃料ガスの流路
- 7 冷却水用マニホールド孔

7 a 冷却水の流路

5 b、6 b、7 b リブ

5 c、6 c、7 c 凹部

10、40、50、60 セパレータ板

11 水素イオン伝導性高分子電解質膜

12 カソード

13 アノード

14 ガスケット

20 カソード側セパレータ板

30 アノード側セパレータ板

10 a、20 a、30 a、40 a、50 a、60 a 電子良導体部位

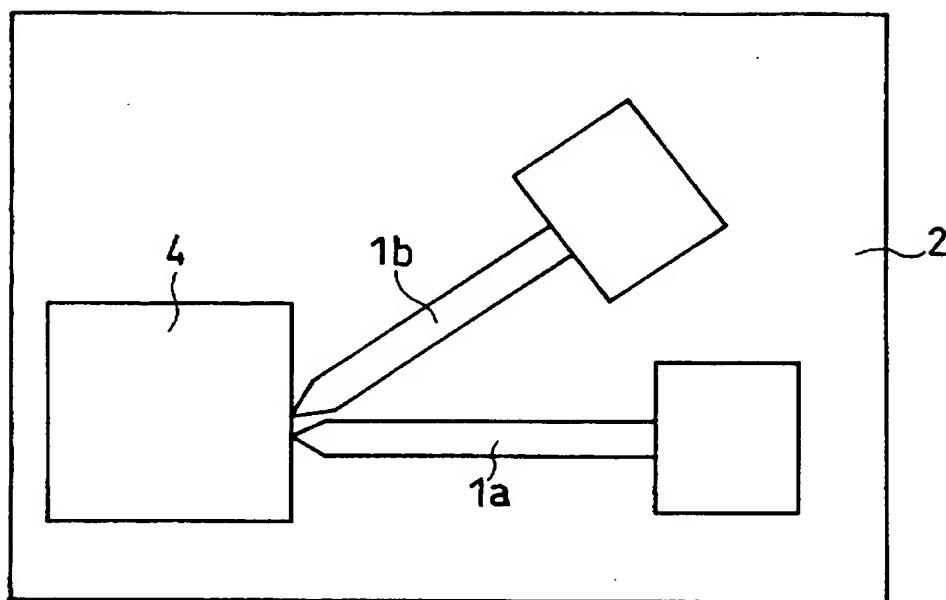
10 b、20 b、30 b、40 b、50 b、60 b 樹脂部位

50 c 板状部材

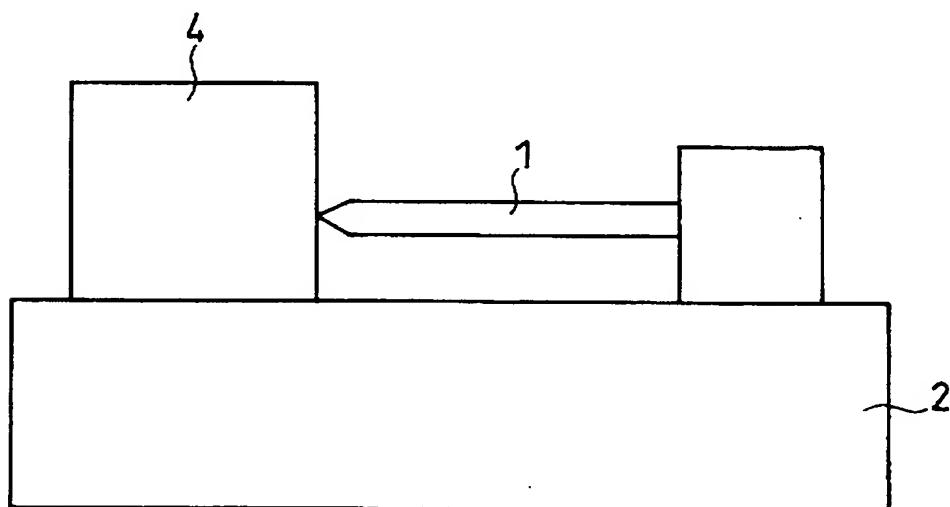
60 c 第三の部位

【書類名】 図面

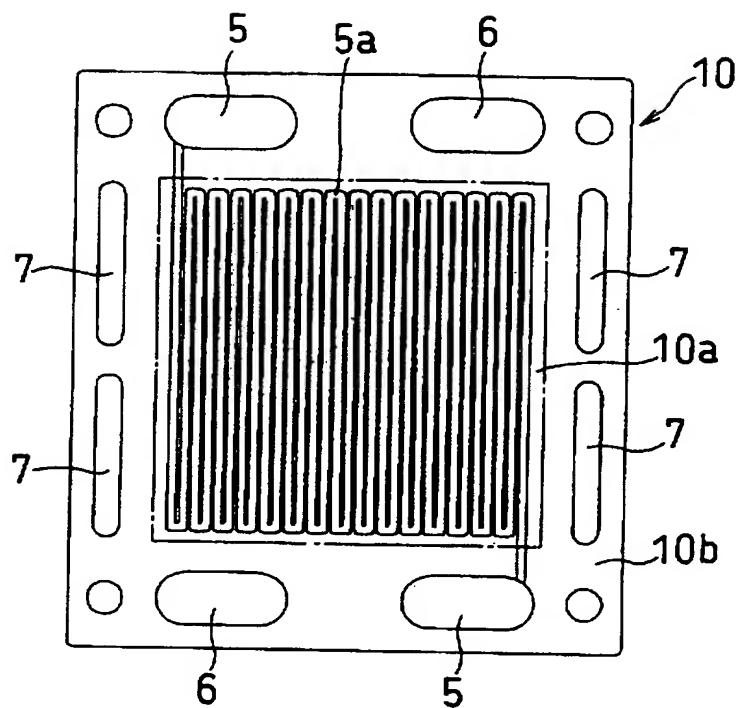
【図 1】



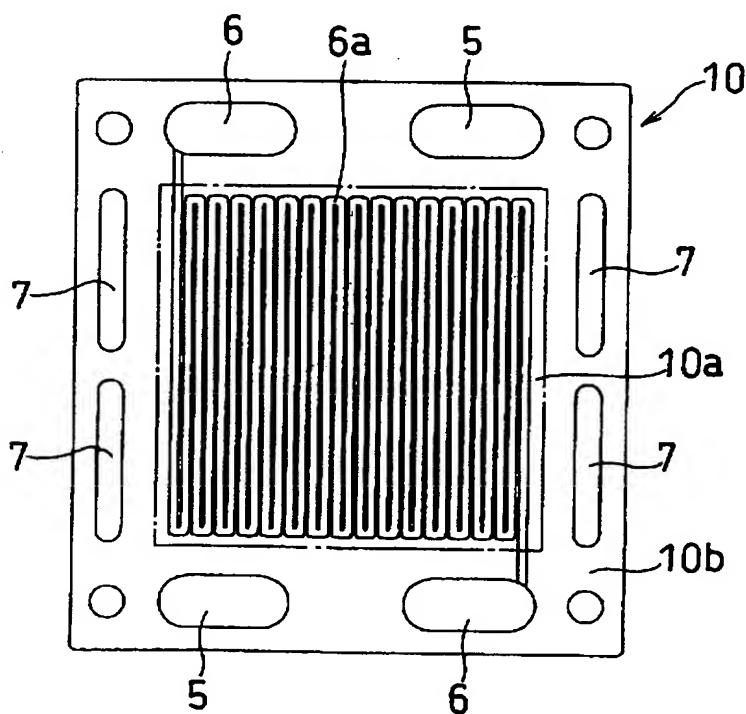
【図 2】



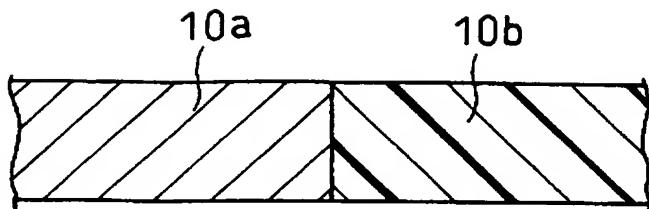
【図3】



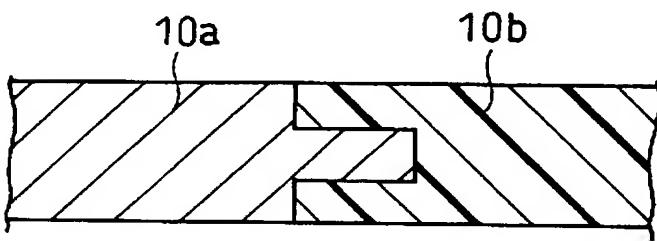
【図4】



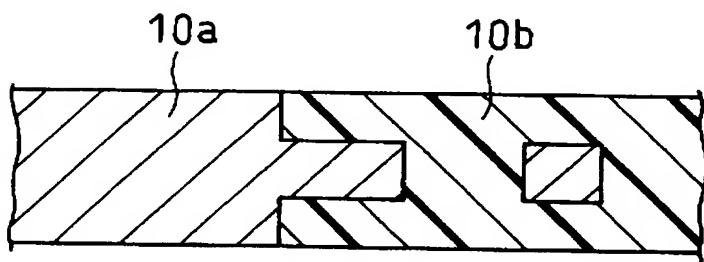
【図5】



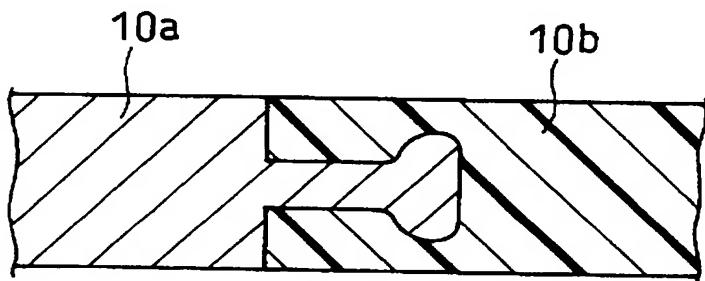
【図6】



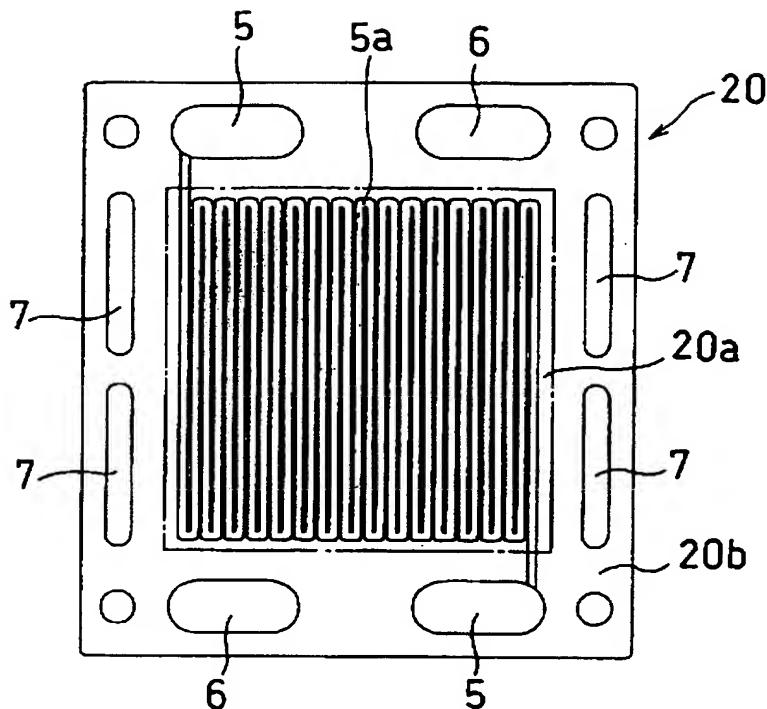
【図7】



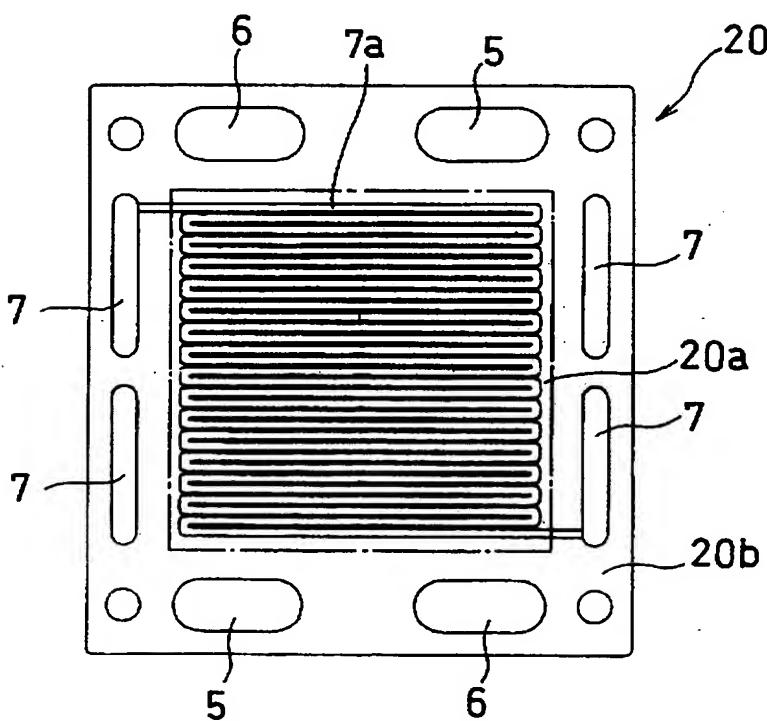
【図8】



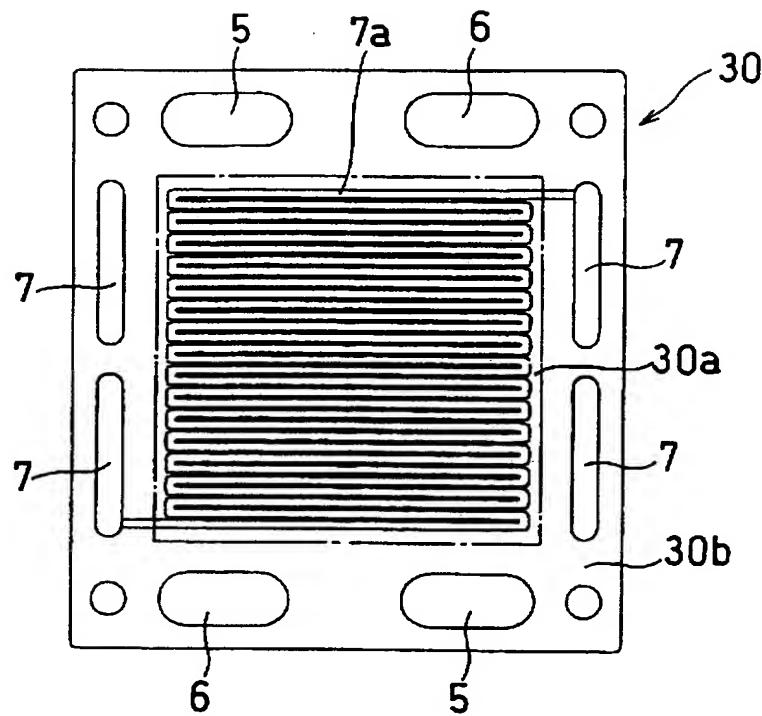
【図9】



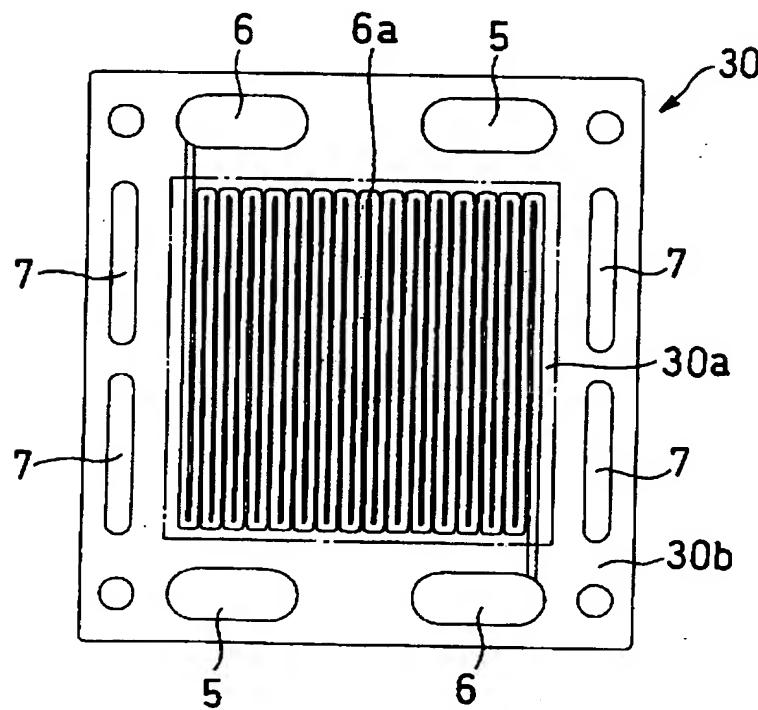
【図10】



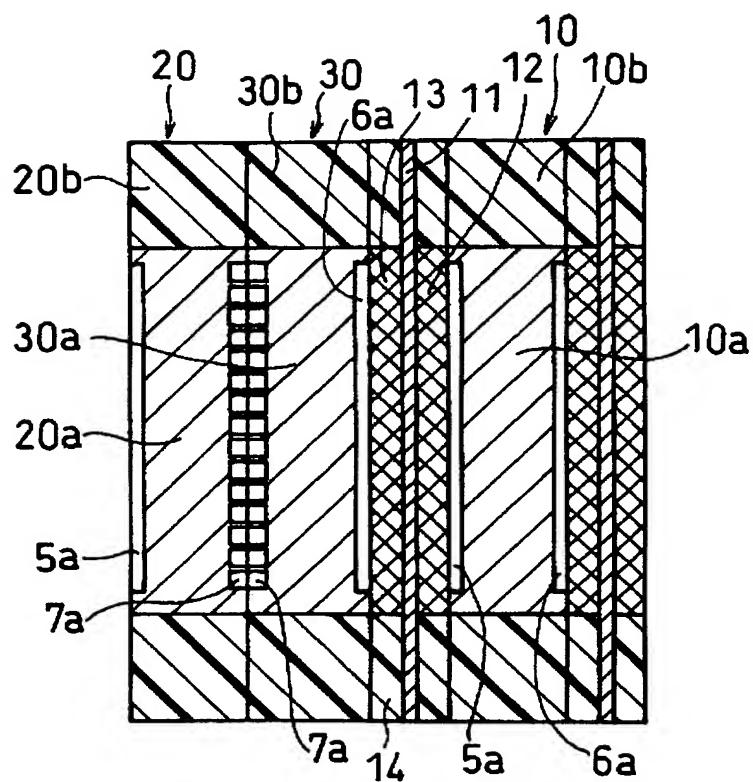
【図11】



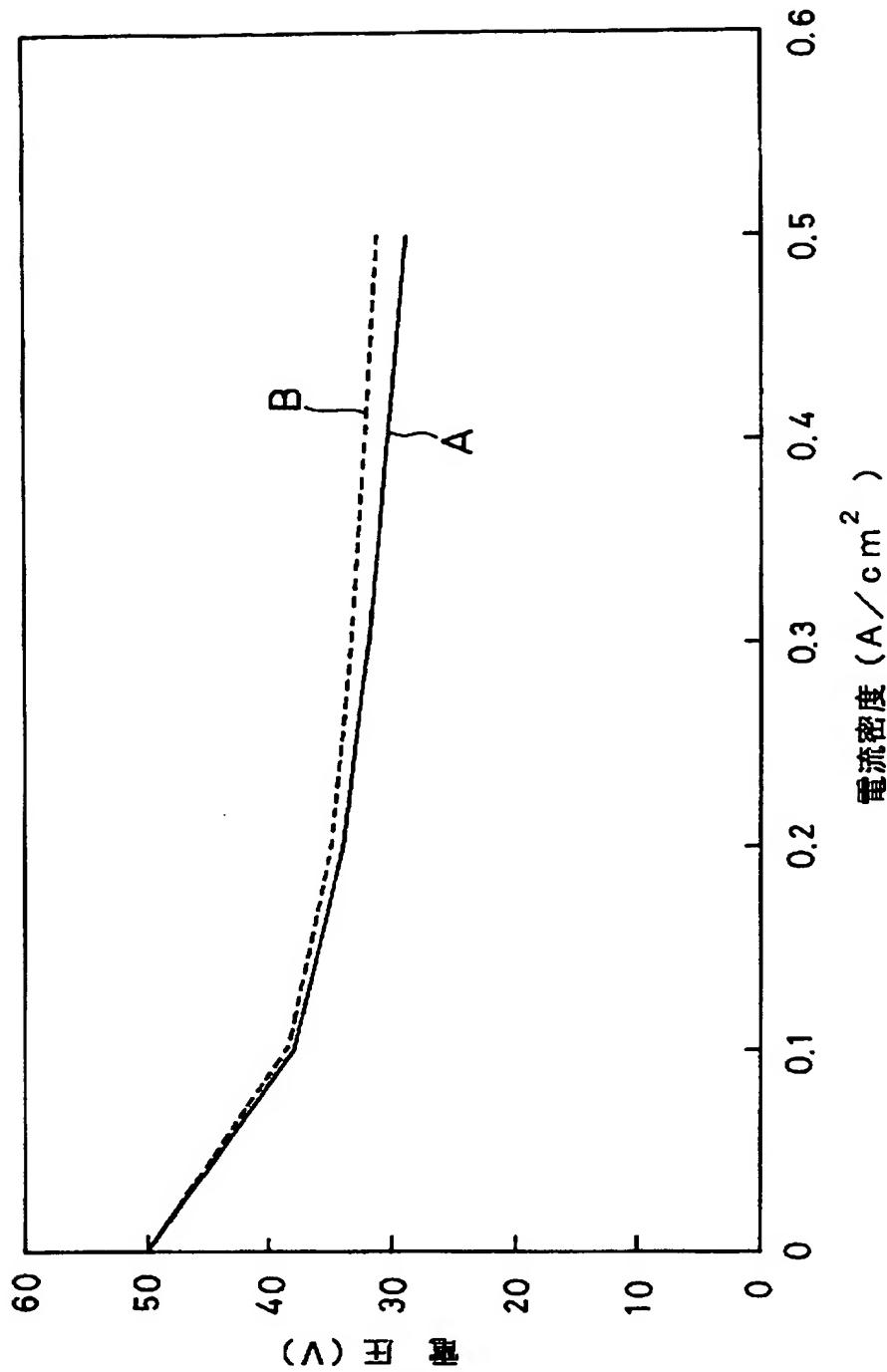
【図12】



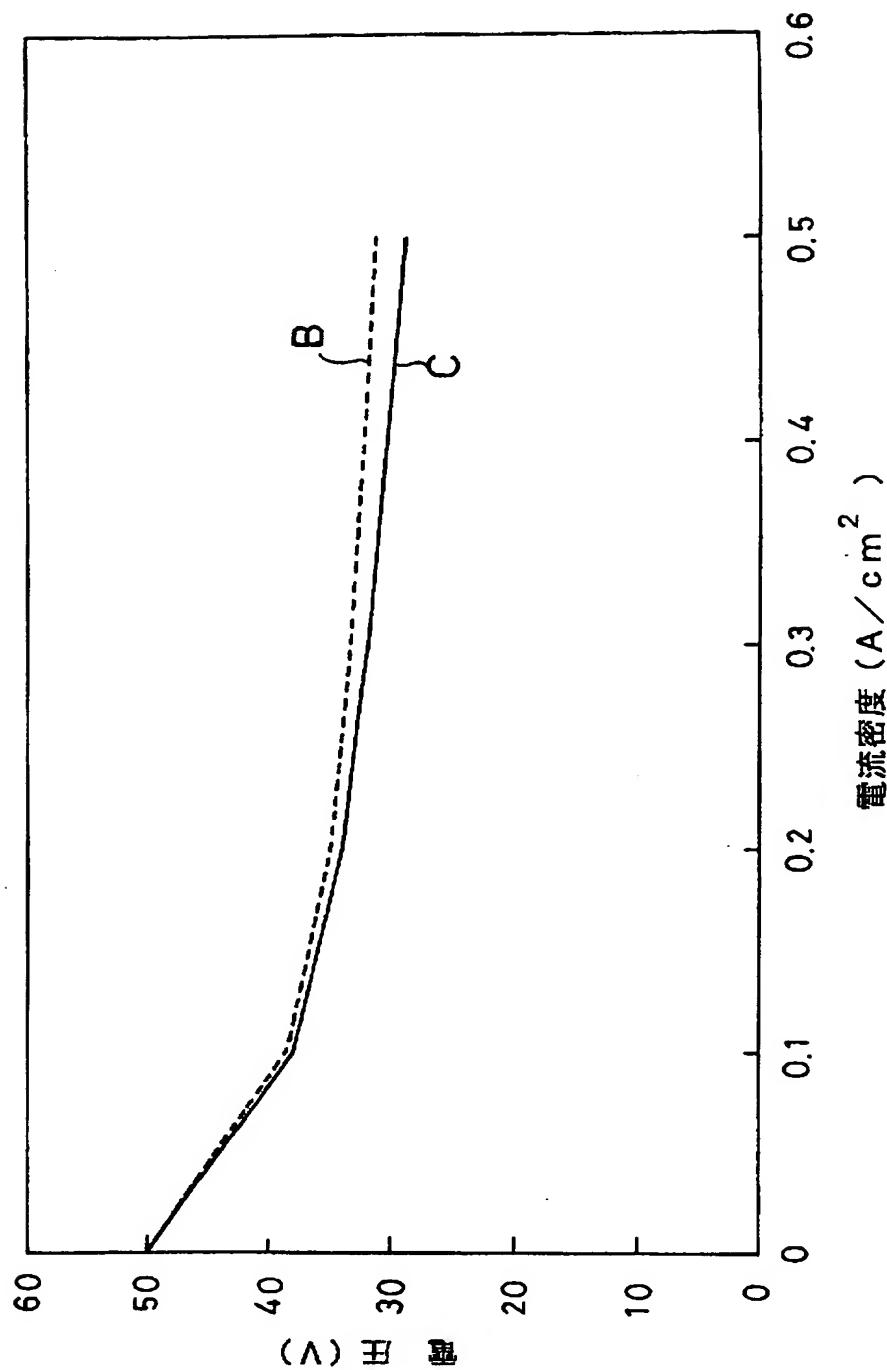
【図13】



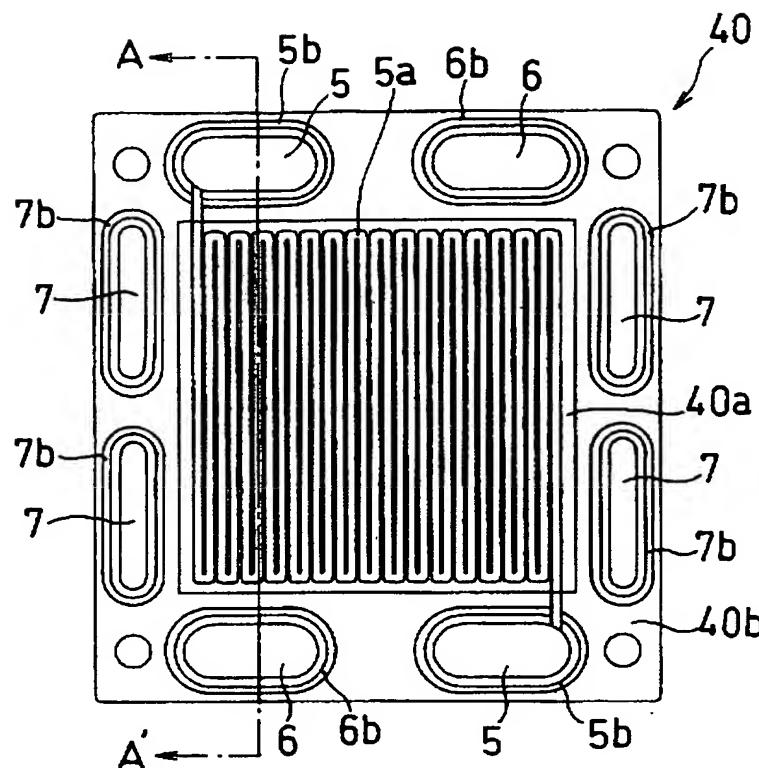
【図14】



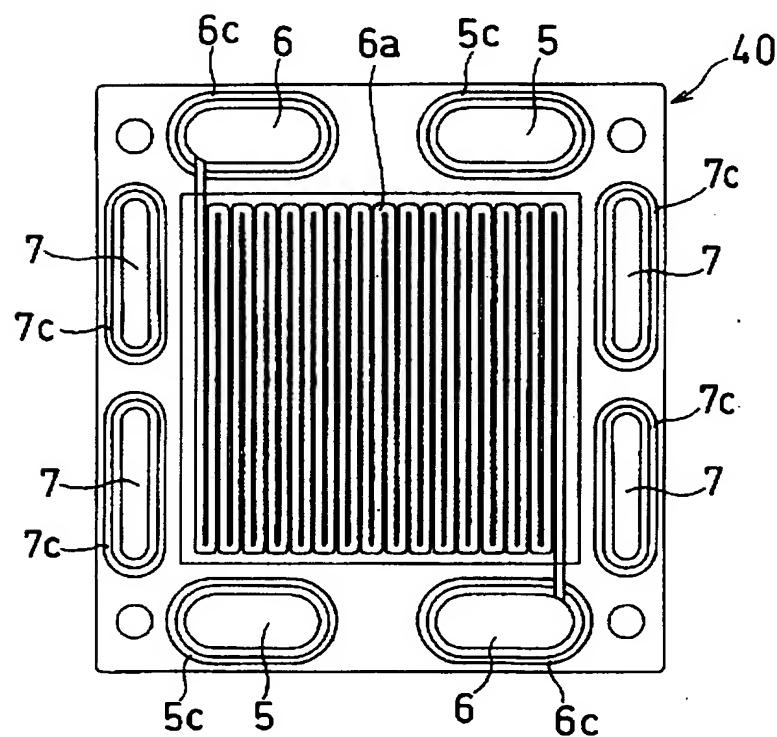
【図15】



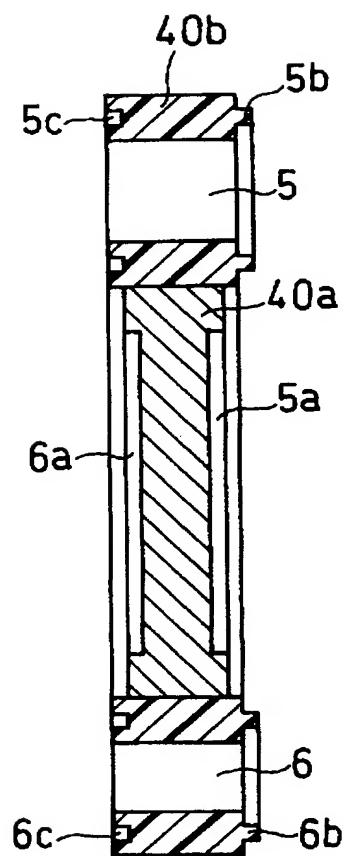
【図16】



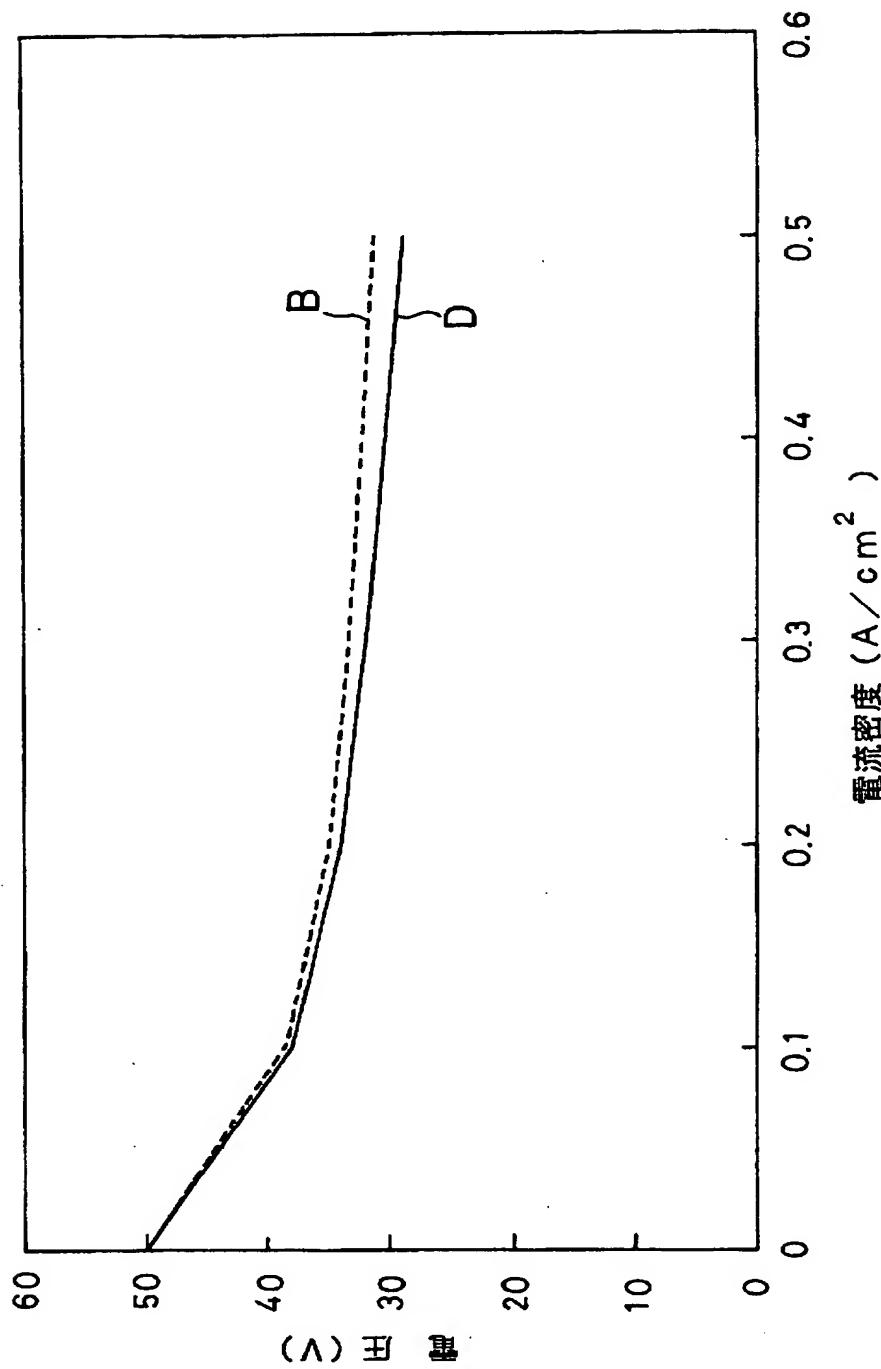
【図17】



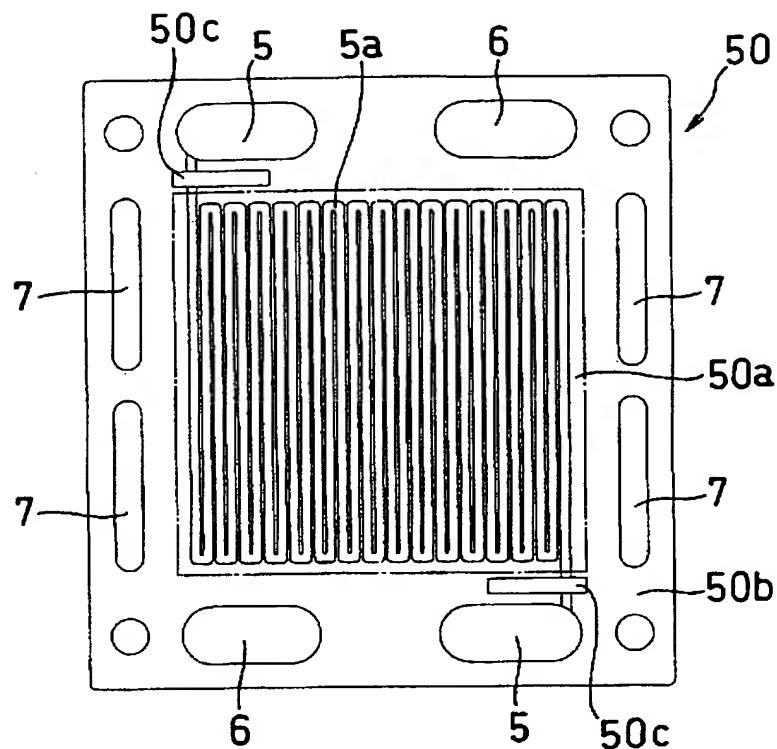
【図18】



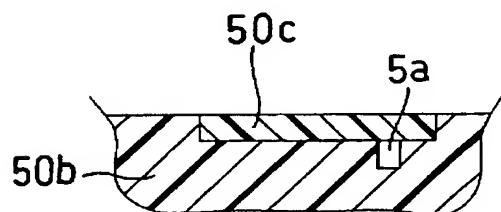
【図19】



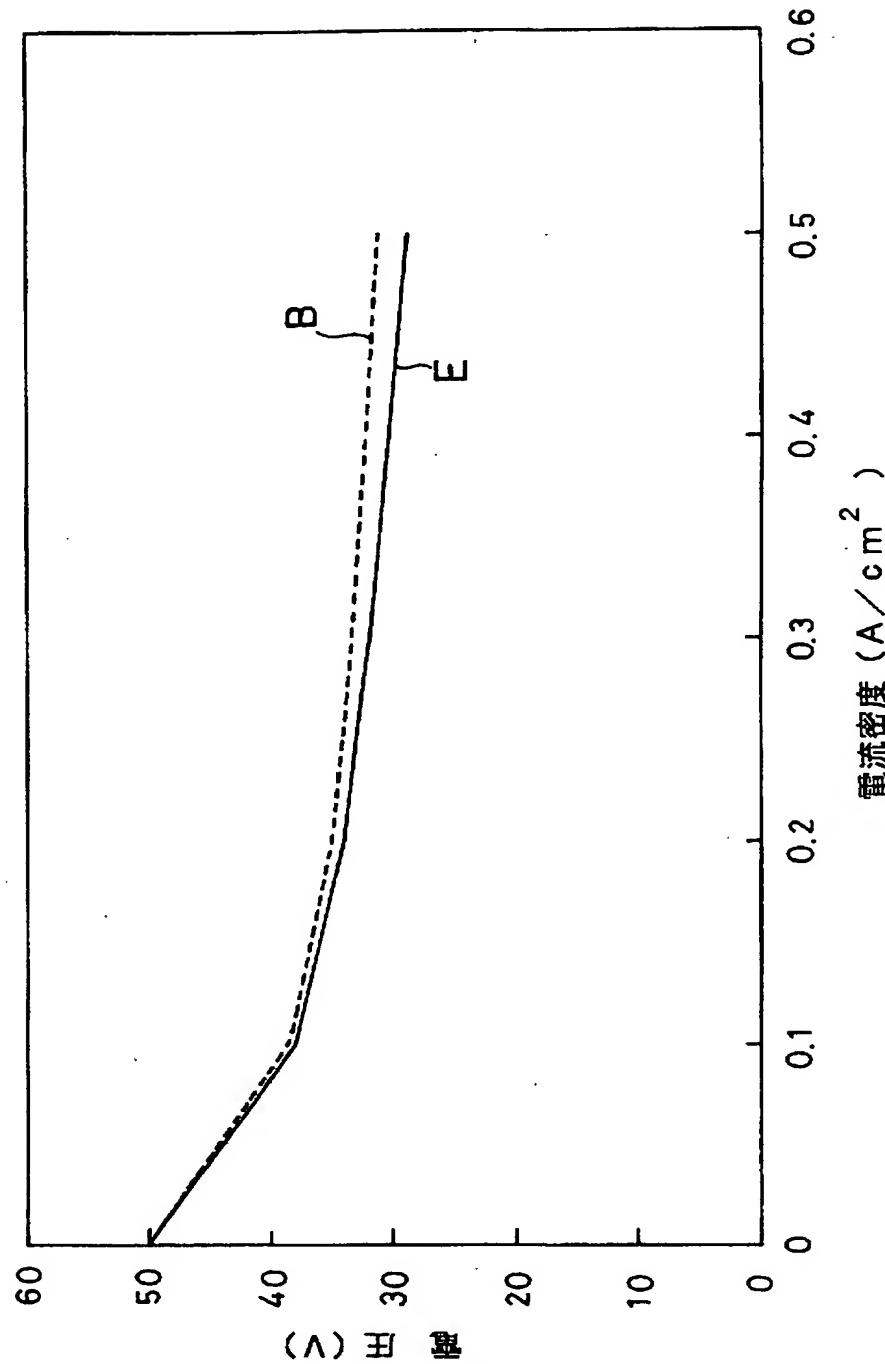
【図20】



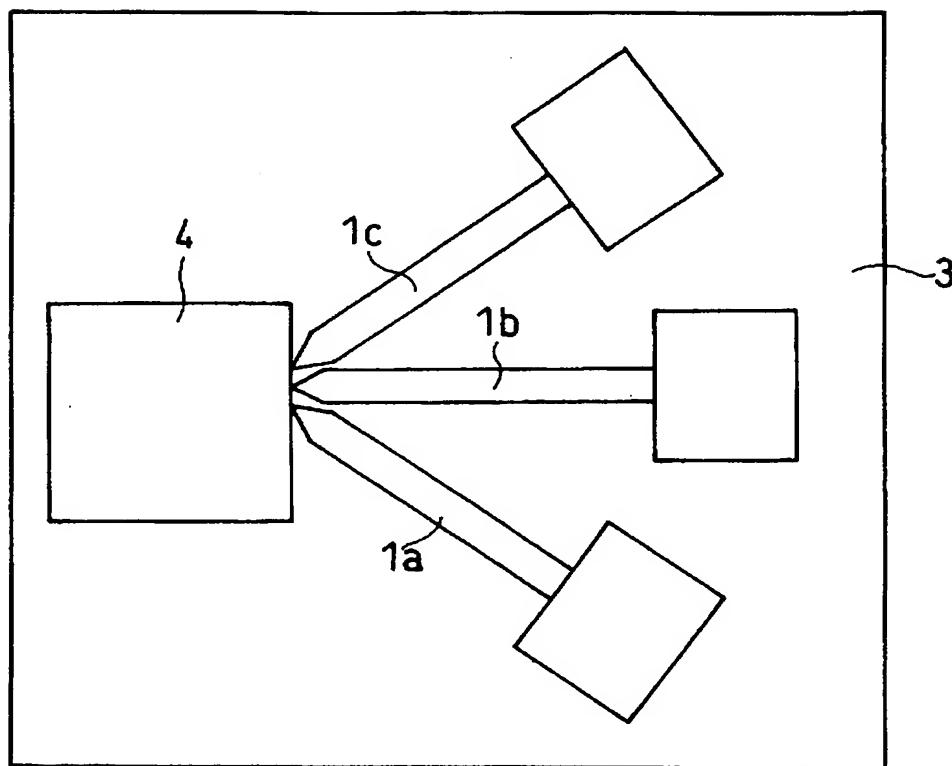
【図21】



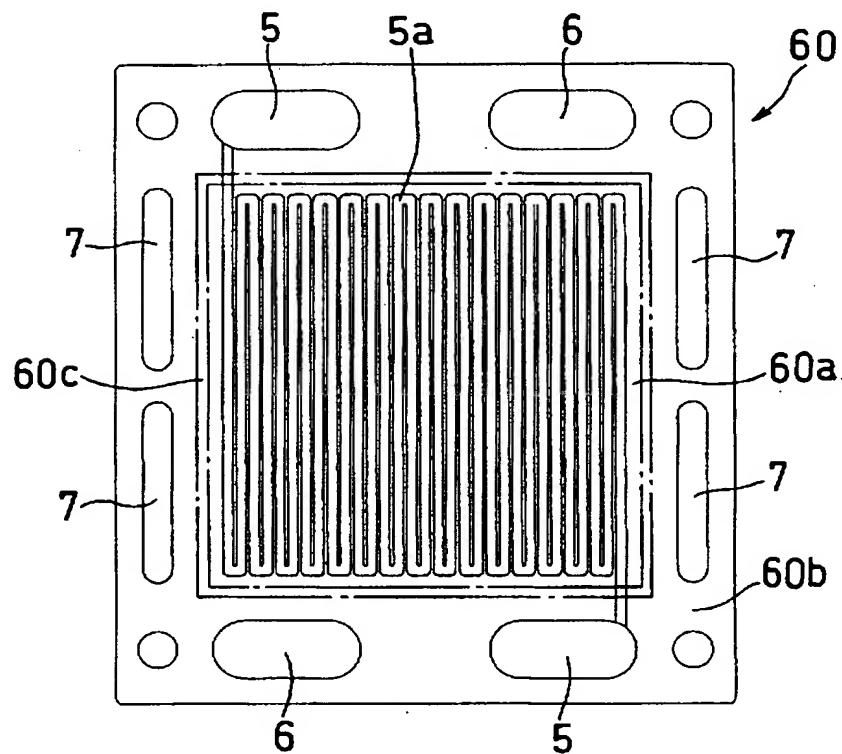
【図22】



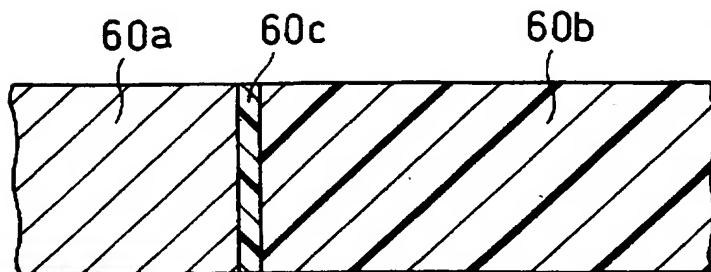
【図23】



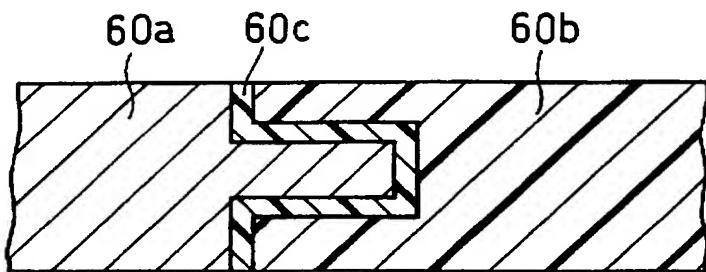
【図24】



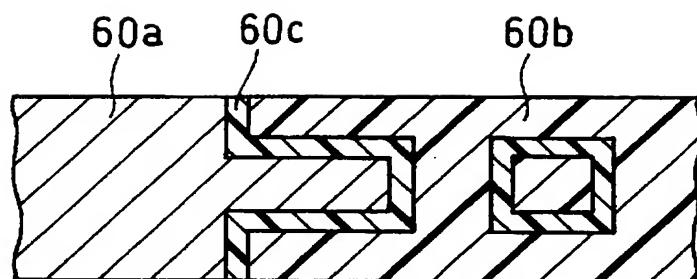
【図25】



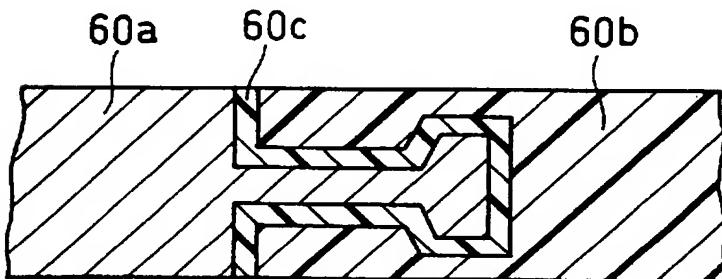
【図26】



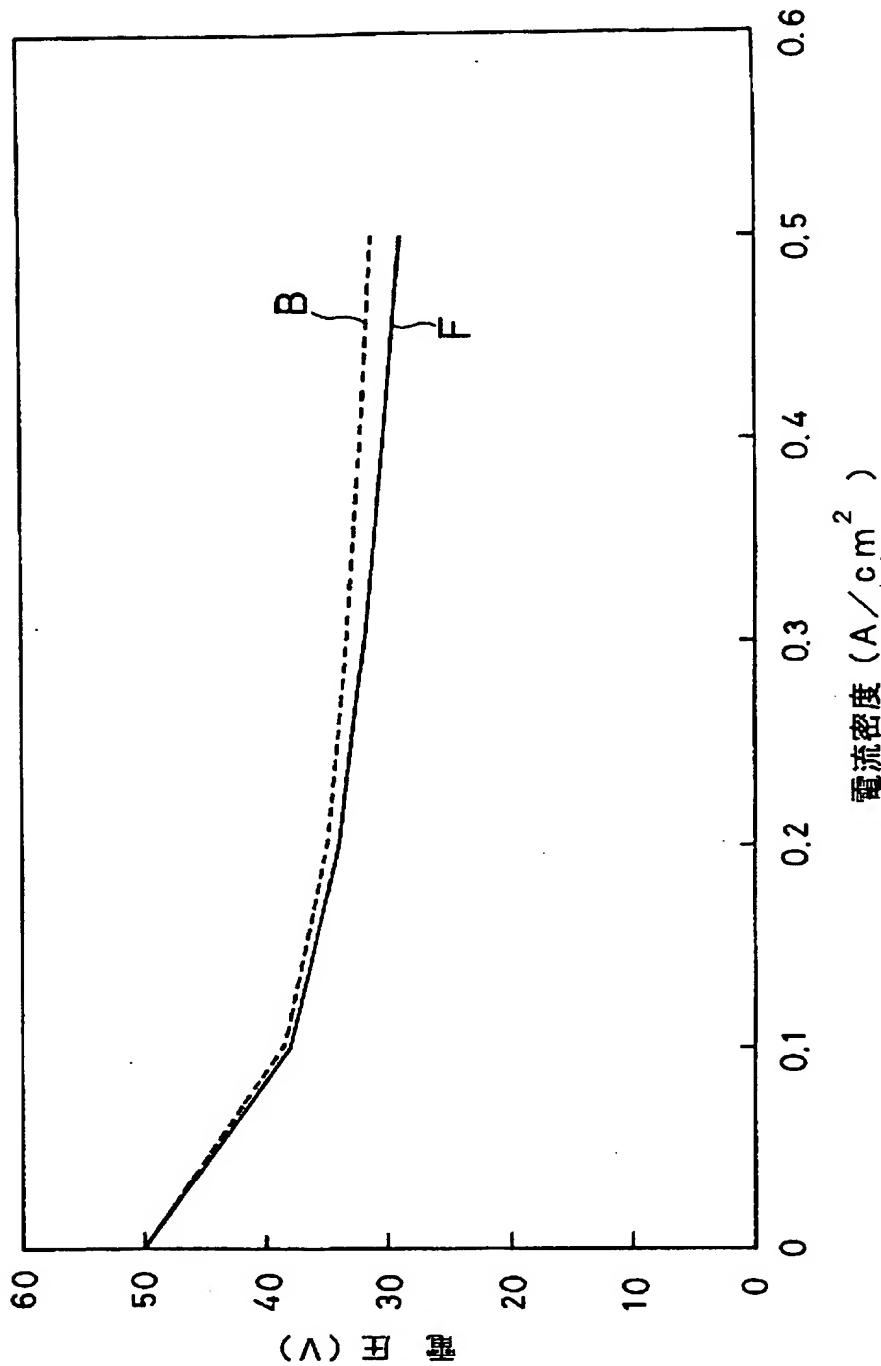
【図27】



【図28】



【図29】



【書類名】 要約書

【要約書】

【課題】 優れた導電性かつ成形性を有する高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板を提供することを目的とする。

【解決手段】 導電性が必要な部位と不必要的部位にそれぞれ異なるコンパウンドを用いて、射出成形により、導電性カーボンを含む電子良導体部位と、前記電子良導体部位の周りを囲む樹脂部位とにより構成され、前記電子良導体部位の両面にそれぞれガスまたは冷却水を流通させる第一の溝ならびに第二の溝を有する高分子電解質型燃料電池用複合セパレータ板を得る。

【選択図】 図3

## 認定・付加情報

|         |                |
|---------|----------------|
| 特許出願の番号 | 特願 2002-301811 |
| 受付番号    | 50201556348    |
| 書類名     | 特許願            |
| 担当官     | 第五担当上席 0094    |
| 作成日     | 平成14年10月17日    |

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

|       |             |
|-------|-------------|
| 【提出日】 | 平成14年10月16日 |
|-------|-------------|

次頁無

特願2002-301811

出願人履歴情報

識別番号 [000005821]

1. 変更年月日 1990年 8月28日

[変更理由] 新規登録

住所 大阪府門真市大字門真1006番地  
氏名 松下電器産業株式会社